Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP2005/022039

International filing date: 24 November 2005 (24.11.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP

Number: 2004-347693

Filing date: 30 November 2004 (30.11.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 January 2006 (03.01.2006)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

2004年11月30日

出 願

Application Number:

特願2004-347693

JP2004-347693

パリ条約による外国への出願 に用いる優先権の主張の基礎 となる出願の国コードと出願 番号

The country code and number of your priority application,

to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

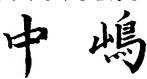
願 人 出

株式会社半導体エネルギー研究所

Applicant(s):

2005年12月14日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office





【書類名】 特許願 P008356 【整理番号】 平成16年11月30日 【提出日】 特許庁長官 殿 【あて先】 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 【氏名】 野村 亮二 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 【氏名】 瀬尾 哲史 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 安部 寛 子 【氏名】 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 【氏名】 高須 貴子 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 井上 英子 【氏名】 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 【氏名】 池田 寿 雄 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 【氏名】 熊木 大介 【発明者】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究 【住所又は居所】 所内 【氏名】 坂田 淳一郎 【特許出願人】 【識別番号】 000153878 【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所 【代表者】 山崎 舜平 【手数料の表示】 【予納台帳番号】 002543 【納付金額】 16,000円 【提出物件の目録】 【物件名】 特許請求の範囲 ! 【物件名】 明細書!

【物件名】

【物件名】

図面!

要約書 !

【書類名】特許請求の範囲

【請求項】】

第1の電極と第2の電極とでなる一対の電極と、

前記一対の電極間にある発光層と、

前記発光層と前記一対の電極の一方との間に位置する複合層とを有し、

前記複合層は一般式 [化1] 乃至 [化5] のいずれかの共役分子と、前記共役分子に対し電子受容性を持つ物質との複合体からなる層であることを特徴とする発光素子。

【化01】

$$R^1$$
 R^2 R^3 R^4 X Y Z R^6

(式中、XとZは同一または異なっており、且つ、XとZはそれぞれ硫黄原子、酸素原子、水素基、アルキル基もしくはアリール基を持つ窒素原子、Xは水素基、アルキル基もしくはアリール基を持つ珪素原子であり、Xはアリーレン基であり、X0 からX1 からX2 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、X1 はアルコキシ基である。)

【化02】

$$R^{1}$$
 R^{2} R^{3} R^{4}
 R^{5} S R^{6}

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^{-1} から R^{-6} はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

【化03】

(式中、Yはアリーレン基であり、R¹からR⁶はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^1 から R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基であり、 R^7 と R^8 は水素基、アルキル基又はアリール基である。)

【化05】

$$R^{1}$$
 R^{2} R^{3} R^{4}
 R^{5} Si R^{6}
 R^{7} R^{8} R^{9} R^{10}

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^{-1} から R^{-6} はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基であり、 R^{-1} から R^{-1} 0はそれぞれ独立に水素基、アルキル基又はアリール基である。)

【請求項2】

請求項1において、前記第1の電極の電位は前記第2の電極の電位よりも高い電圧を印加され、前記第1の電極と前記発光層との間に前記複合層は配置されることを特徴とする発光素子。

【請求項3】

請求項1または請求項2において、前記第1の電極の電位は前記第2の電極の電位よりも高い電圧を印加され、前記第2の電極と前記発光層との間に前記複合層は配置され、前記複合層と前記発光層側で接するように電子発生層を有することを特徴とする発光素子。

【請求項4】

請求項1乃至請求項3のいずれか一項において、前記共役分子に対し電子受容性を持つ前記物質は、金属酸化物または金属窒化物であることを特徴とする発光素子。

【請求項5】

【請求項6】

請求項1乃至請求項5のいずれか一項において、前記共役分子の R^1 と R^2 とで環構造を形成し、且の R^3 と R^4 とで環構造を形成することを特徴とする発光素子。

【請求項7】

請求項1乃至請求項6のいずれか一項において、前記物質は金属酸化物または金属窒化

物であることを特徴とする発光素子。

【請求項8】

請求項1乃至請求項7のいずれか一項に記載の発光素子を画素として用いることを特徴とする電子機器。

【請求項9】

請求項1乃至請求項7のいずれか一項に記載の発光素子を光源として用いることを特徴とする電子機器。

【書類名】明細書

【発明の名称】発光素子及びそれを用いた電子機器

【技術分野】

[0001]

本発明は発光素子に関する。特に、共役分子と共役分子に対して電子受容性を持つ物質との複合体により構成した層を有する発光素子に関する。また、発光素子を有する発光装置に関する。

【背景技術】

[0002]

エレクトロルミネセンス(EL)ディスプレイは、次世代のフラットバネルディスプレイ素子として最も注目されているものの一つであり、発光素子により構成される。発光素子は、電流を流すことにより陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が発光層で再結合して分子励起子を形成する。そして、分子励起子が基底状態に戻る際に放出する光子を利用して、発光素子は発光する。従って、分子励起子の励起エネルギーの全てを発光に利用することが、発光効率の良い発光素子を作製するための条件の一つとなる。

[0003]

上記条件を満たす一つの例としては発光素子の積層構造がある。例えば、陽極と陰極からなる一対の電極間に、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層等で 積層を形成する。

[0004]

また、発光層に効率良くキャリアである正孔と電子を注入することも、発光効率の良い 発光素子を作製するための条件の一つとなる。そのために、正孔注入層にはイオン化ポテ ンシャルの小さい材料を用い、電子注入層には電子親和力の大きい材料を用いることが知 られている。

[0005]

以上のような発光素子の積層構造を構成する層は、無機化合物である金属酸化物、また は有機化合物で形成されている。

[0006]

また、有機化合物と無機化合物を混合した層を用い、発光素子を形成するという試みもなされている。例えば、下記特許文献1では、シリカマトリックス中に有機化合物(ホール輸送性化合物、電子輸送性化合物、発光性化合物)を共有結合を介して分散した層を積層して形成した発光素子も開示されている。特許文献1では、素子の耐久性や耐熱性が向上すると報告されている。

【特許文献1】特開2000-306669

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0007]

しかしながら、発光素子を構成する層として金属酸化物を用いた場合は次のような問題があった。金属酸化物は結晶化しやすく、結晶化により金属酸化物表面に凹凸が形成される。この凸部分に電界が集中し、信頼性の高い発光素子は得られなかった。また、ゴミ等に起因する素子の短絡を防ぐ目的や、発光層からの出射光を効率良く取り出す光学設計の目的で、金属酸化物の膜厚を厚くすると、駆動電圧が上昇するという問題があった。

[0008]

有機化合物を発光素子を構成する層として用いた場合は、駆動電圧が陽極の仕事関数に依存してしまうため、仕事関数が小さい陽極を使うことはできず、電極材料に制限があった。また、上記金属酸化物材料と同様に、膜厚を厚くすると駆動電圧が高くなるという問題があった。

[0009]

また、上記特許文献 1 で開示されているような発光素子は、絶縁性である金属酸化物中に有機化合物が単に分散されているたけであるため、従来の発光素子に比べて電流が流れ

にくくなってしまう(すなわち、ある電流を流すのに必要な電圧が高くなってしまう)。 つまり低密度の電流しか流れないことになる。したがって、特許文献 l の構成では、耐久 性や耐熱性が得られたとしても、駆動電圧の上昇や、それに伴う消費電力の上昇を招いて しまう。

[0010]

さらに、特許文献 1 で示されているような構成で膜厚を厚くすると、駆動電圧の上昇は さらに顕在化してしまう。つまり、特許文献 1 の構成では、膜厚を厚くすることは実用的 には困難である。

[0011]

図14は上記特許文献1で開示されている従来の発光素子であり、第1の電極(陽極)1501と第2の電極(陰極)1502との間に、シリカマトリクスに有機化合物を分散してなる層1503が挟持されている。すなわち、層1503は全てシリカマトリクスで構成されているが、1511はシリカマトリクスに正孔輸送性化合物を分散した正孔輸送層であり、1513はシリカマトリクスに電子輸送性化合物を分散した電子輸送層であり、1512はシリカマトリクスに発光性化合物を分散した発光層である。この素子に電圧を印加すると、第1の電極(陽極)1501から正孔が、第2の電極(陰極)202から電子がそれぞれ注入され、発光層1512で再結合し、発光性化合物が発光に至ると考えられる。

[0012]

この素子におけるキャリア輸送は正孔輸送層1511や電子輸送層1513が担っているが、絶縁性のシリカマトリクスに有機化合物が分散されているため、電流が流れにくいという問題がある。例えば正孔輸送層1511においては、正孔は正孔輸送層1511中に存在する正孔輸送性化合物間をホッピングして移動するため、絶縁性であるシリカマトリクスは正孔の輸送に関与することはない。逆に、正孔のホッピングの妨げになってしまう。電子輸送層1513についても同様のことが言える。したがって当然、従来の発光素子と比較しても駆動電圧は上昇してしまう。

[0013]

そこで本発明は、駆動電圧が低い発光素子を提供することを課題とする。また、信頼性が高い発光素子を提供することを課題とする。また、短絡を防止しやすい発光素子を提供することを課題とする。また、光学設計がしやすい発光素子を提供することを課題とする。また、正孔注入性または正孔輸送性の高い発光素子を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

$[0\ 0\ 1\ 4]$

本発明者は、鋭意検討を重ねた結果、一般式 [化1] ~ [化5] で示された共役分子のいずれか(以下、共役分子と言う)とこの共役分子に対し電子受容性を持つ物質(以下、電子受容性物質と言う)との複合体からなる層(以下、複合層と言う)を、一対の電極の少なくとも一方と、一対の電極間に位置する発光層との間に配置することで、課題を解決できることを見出した。

[0015]

電子受容性物質としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましく、さらに好ましくは周期表第4族乃至第12族のいずれかの遷移金属酸化物がある。中でも、周期表第4族乃至第8族のいずれかの遷移金属酸化物は電子受容性の高いものが多く、特に酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化レニウム、酸化タングステン、酸化ルテニウム、酸化チタン、酸化クロム、酸化ジルコニウム、酸化ハフニウム、酸化タンタル、酸化ニオブが好適である。

[0016]

また、複合層における電子受容性物質と一般式 [化1] \sim [化5] で示された共役分子のいずれかとの最適な混合比は、モル比で電子受容性物質/共役分子= $0.1\sim10$ 、好ましくは $0.5\sim2$ である。この混合比のときが、電子受容性物質と共役分子との間で電子の授受が効率よく行われ、最も複合層の導電性が高くなる。

【0017】

(式中、XとZは同一または異なっており、且つ、XとZはそれぞれ硫黄原子、酸素原子、水素基、アルキル基もしくはアリール基を持つ窒素原子、又は水素基、アルキル基もしくはアリール基を持つ珪素原子であり、Yはアリーレン基であり、 R^1 から R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

【0018】

$$R^1$$
 R^2 R^3 R^4 R^5 R^5 R^6

(式中、Yはアリーレン基であり、R¹からR⁶はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

【0019】

(式中、Yはアリーレン基であり、R¹からR⁶はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

[0020]

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^{-1} から R^{-6} はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基であり、 R^{-7} と R^{-8} は水素基、アルキル基又はアリール基である。)

【0021】 【化05】

$$R^{1}$$
 R^{2} R^{3} R^{4}
 R^{5} Si Si R^{6}
 R^{7} R^{8} R^{9} R^{10}

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^1 から R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基であり、 R^7 から R^{10} はそれぞれ独立に水素基、アルキル基又はアリール基である。)

[0022]

上記一般式 [化1] ~ [化5] で示される共役分子において、式中Yはアリーレン基であり、且つ、炭素数 6 から 2 0 の炭化水素芳香環からなる二価の基又は酸素、窒素、硫黄もしくは珪素を含む炭素数 4 から 3 0 の二価の複素環式基である。

[0023]

上記一般式 [化 1] ~ [化 5] で示す共役分子において、式中 R^1 と R^2 とで環構造を形成し、且の R^3 と R^4 とで環構造を形成する。

[0024]

本発明の構成の一つは、第1の電極と第2の電極でなる一対の電極と、その電極の間に ある発光層と、第1の電極と発光層との間にある第1の層と、第2の電極と発光層との間 にある第2の層とを有し、第1の層または第2の層は、電子受容性物質と一般式[化1] ~[化5]で示される上記(1)~(5)の共役分子いずれかとの複合層を含む。

[0025]

上記構成において、複合層は第1の層において、第1の電極と接して配置されても良いし、発光層と接して配置されても良い。また、複合層は第2の層において、第2の電極と接して配置されても良い。

[0026]

上記構成において、第1の層及び第2の層ともに複合層を含んでも良い。また、第1の電極の電位が第2の電極の電位よりも高くなるように電極に電圧が印加され、第2の層が複合層を含むときは、複合層に接して発光層側に電子発生層を設ける。

[0027]

本明細書における複合層とは、上述した一般式 [化1] ~ [化5]で示す(1)~(5)の共役分子のいずれかと、この共役分子に対して電子受容性を持つ物質との複合体を用いて形成した層のことである。

【発明の効果】

[0028]

一般式 [化1] から [化5] で表される化合物は、イオン化ポテンシャルの小さい電子過剰型芳香環であるチオフェン、フラン、ピロール基二つをフェニレン環などの共役分子に導入したものである。したがって、共役分子はイオン化ポテンシャルが小さいことがわかっている。特に R l から R b がアルコキシ基などの電子供与性置換基の場合、さらに小さなイオン化ポテンシャルを持つ。このような共役分子と電子受容性物質を混合させ複合層とすることで、共役分子と電子受容性物質との間で電子の授受が起こる。つまり、電圧が発光素子に印加される前に既に複合層において、共役分子が持つイオン化ポテンシャルに基づく正孔が発生している状態になる。

[0029]

従って、単にイオン化ポテンシャルが小さい材料のみを用いた層よりも、本願の複合層を有したほうが、より正孔注入障壁が低減された発光素子が得られる。また、より正孔が移動しやすい発光素子が得られる。このような複合層の機能からみると、本願の複合層は正孔発生層、正孔輸送層のように機能することもある。

[0030]

また、上述したように本願で用いる複合層では、電圧印加前でも電子の授受が行われるため、複合層は非常に導電性の高い膜となる。従って、駆動電圧及び消費電力の小さい発光素子を提供することができる。さらに、複合層の厚膜化に比例して駆動電圧が上昇することが少ない。よって、複合層を厚膜化して短絡を防止することができる。また、複合層の厚膜化により光学設計を最適化することが可能となる。さらに、信頼性が高い発光素子を提供することができる。加えて、発光効率の高い発光素子を提供することができる。

[0031]

さらに、共役分子と電子受容性物質を混合させた複合層は結晶化し難いため、層の結晶化に起因した動作不良の少ない発光素子を得ることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

[0032]

以下、本発明の一態様について説明する。但し、本発明は、実施可能な範囲において、多くの異なる態様で実施することが可能である。本発明の趣旨及びその範囲から逸脱することなくその形態及び詳細を様々に変更し得ることは当業者であれば容易に理解される。従って、本形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。また、以下に示す実施の形態及び実施例は、適宜組み合わせることが可能である。

[0033]

(実施の形態1)

本発明の発光素子の一態様について図しを用いて説明する。

[0034]

図1(A)~(C)には、第1の電極101と第2の電極102との間に、第1の電極101と接する第1の層111、第1の層111と接する第2の層112、第2の層112と第2の電極102に接する第3の層113とを有する発光素子が示されている。図1では、第1の電極101の電位が、第2の電極102の電位よりも高くなるように電極に電圧が印加される。第2の層112は発光層であり、第3の層113は、電子を第2の層である発光層に運ぶ又は注入する機能を持つ層である。

[0035]

第2の層 1 1 2 は発光物質を含んでいる。第2の層 1 1 2 は、発光物質のみから形成された層であってもよい。しかし、濃度消光を生じる場合は、発光物質の有するエネルギーギャップよりも大きいエネルギーギャップを有する物質からなる層中に、発光物質が分散

するように混合された層であることが好ましい。第2の層112に発光物質を分散して含ませることで、発光が濃度に起因して消光してしまうことを防ぐことができる。ここで、エネルギーギャップとはLUMO準位とHOMO準位との間のエネルギーギャップをいう

[0036]

発光物質について特に限定はなく、発光効率が良好で、所望の発光波長の発光をし得る 物質を用いればよい。例えば、赤色系の発光を得たいときには、4ージシアノメチレンー 2-イソプロピルー6-[2-(1, 1, 7, 7-テトラメチルジュロリジンー9ーイル) エテニル】--4 Hーピラン(略称:DCJTI)、4ージシアノメチレンー2ーメチル -6-[2-(1, 1, 7, 7ーテトラメチルジュロリジンー9ーイル)エテニル]ー4 H-ピラン (略称: DCJT)、4-ジシアノメチレンー2-tert-ブチルー6-[2- (1, 1, 7, 7-テトラメチルジュロリジン-9-イル) エテニル] -4H-ピラ ン (略称:DCJTB) やペリフランテン、2,5ージシアノー1,4ービス[2ー(1 0-メトキシー1,1,7,7-テトラメチルジュロリジンー9-イル)エテニル]ベン ゼン等、600nmから680nmに発光スペクトルのピークを有する発光を呈する物質 を発光物質として用いることができる。また緑色系の発光を得たいときは、N,N'ージ メチルキナクリドン (略称:DMQd)、クマリン6やクマリン545T、トリス(8 ー キノリノラト)アルミニウム(略称:Ala3)等、500nmから550nmに発光ス ベクトルのピークを有する発光を呈する物質を発光物質として用いることができる。また 、青色系の発光を得たいときは、9,10ービス(2ーナフチル)ーtertープチルア ントラセン(略称:t-BuDNA)、9,9'-ピアントリル、9,10-ジフェニル アントラセン(略称:DPA)、9、10ーピス(2ーナフチル)アントラセン(略称: DNA)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラトーガリウム (略称:B G a q)、ピス(2 - メチル-8 - キノリノラト)-4 -フェニルフェノラト ーアルミニウム(略称:BAla)等、420nmから500nmに発光スペクトルのピ ークを有する発光を呈する物質を発光物質として用いることができる。以上のように、蛍 光を発光する物質の他、ビス【2-(3,5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル)ピ リジナトーN, C^{2'}] イリジウム (III) ピコリナート (略称: Ir (CF3ppy) 2 ジウム (I I I) アセチルアセトナート (略称:FIr (acac))、ピス [2-(4 ,6-ジフルオロフェニル)ビリジナト- N , $\mathrm{C}^{\,2\,'}$] イリジウム(I I I) ピコリナート (略称:F I r (p i c))、トリス (2-フェニルピリジナト-N, C^{2'}) イリジウム (略称:Іг (рру) 3) 等の燐光を発光する物質も発光物質として用いることができ る。

[0037]

また、発光物質と共に発光層に含まれ、発光物質を分散状態にするために用いられる物質について特に限定はなく、発光物質として用いる物質のエネルギーギャップ等を勘案して適宜選択すればよい。例えば、9, 10-ジ(2-ナフチル)-2-tert-ブチルアントラセン(略称:t-BuDNA)等のアントラセン誘導体、または4, 4'-ビス(N-カルバゾリル)ビフェニル(略称:CBP)等のカルバゾール誘導体、2, 3-ビス(4-ジフェニルアミノフェニル)キノキサリン(略称:TPAQn)、2, 3-ビス(4-[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]フェニル}-ジベンゾ [f, h]キノキサリン(略称:NPADiBzQn)等のキノキサリン誘導体の他、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ビリジナト] 亜鉛(略称:Znpp2)、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト] 亜鉛(略称:Znpp2)、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト] 亜鉛(略称:Znpp2)、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト] 亜鉛(略称:Znpp2)、ビス [2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト] 亜鉛(略称:2-ローの金属錯体等を発光物質と共に用いることができる。

[0038]

図1(A)において、第1の層111は、共役分子と電子受容性物質でなる複合体で構成された複合層114と正孔輸送層115とを有する。複合層114は、第1の層において第1の電極101側に配置され、正孔輸送層115は第2の層112側に配置される。

この構成では複合層114は正孔発生層として機能する。

[0039]

また、一般的には、第1の電極101には仕事関数の大きい電極材料を用いるが、複合層114と第1の電極101が接している場合、第1の電極101に仕事関数が小さい電極(例えばアルミニウムやマグネシウム等)を用いることができる。これは、複合層114の構成因子である共役分子のイオン化ポテンシャルが非常に小さく、複合層114には正孔が発生しているため、仕事関数が小さい第1の電極101と複合層114との間でも正孔の授受が起こるからである。

[0040]

図1(B)において、第1の層111は、共役分子と電子受容性物質でなる複合体で構成された複合層116と正孔注入層117とを有する。複合層116は、第1の層において第2の層側に配置され、正孔注入層117は第1の電極101側に配置される。この構成では複合層116は正孔輸送層として機能する。

[0041]

図1(C)は、第1の層111が共役分子と電子受容性物質でなる複合体で構成された複合層118となっている。この構成では複合層118は正孔発生層、正孔輸送層、又は正孔発生層と正孔輸送層として機能する。

[0042]

図1(A)~(C)のどの構成においても、複合層が第1の電極101と発光層である第2の層112との間に位置するため、正孔注入性もしくは正孔輸送性が高い発光素子が得られる。また、複合層は導電性が高いため膜厚を厚くしても駆動電圧が上昇しない。従って、複合層を厚膜化し、最適な光学設計を行ったり、電極同士の短絡を抑えることができる。なお、図1(A)及び図1(B)のそれぞれにおいて、複合層が第1の電極や第2の層に接している例を示したが、必ずしも接している必要はない。図1(A)では複合層114と第1の電極101との間に他の層があっても良いし、図1(B)では複合層116と第2の層112との間に他の層があっても良い。

[0043]

図l(A)において、正孔輸送層ll5は、正孔を輸送する機能を有する層であり、複 合層114から第2の層112へ正孔を輸送する機能を有する。正孔輸送層115を設け ることによって、複合層114と第2の層112との距離を離すことができ、その結果、 複合層114に含まれている金属に起因して発光が消光することを防ぐことができる。正 孔輸送層は、正孔輸送性の高い物質を用いて形成することが好ましく、特に 1×10⁻¹c m²/Vs以上の正孔移動度を有する物質を用いて形成することが好ましい。 なお、正孔 輸送性の高い物質とは、電子よりも正孔の移動度が高く、電子の移動度に対する正孔の移 動度の比の値 (=正孔移動度/電子移動度) が100よりも大きい物質をいう。正孔輸送 層115を形成するのに用いることができる物質の具体例としては、4,4'ーピス[N - (1 - ナフチル) - N - フェニルアミノ] ピフェニル(略称:N P B) 、 4 , 4 ' ービ ス [N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ] ピフェニル(略称:TPD)、 4, 4', 4''ートリス (N, N-ジフェニルアミノ) トリフェニルアミン (略称: T DATA) 、4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルア ミノ] トリフェニルアミン (略称: MTDATA)、4,4 'ーピス {N-[4-(N, N-ジ-m-トリルアミノ)フェニル] -N-フェニルアミノ} ピフェニル(略称:DN TPD)、1,3,5ートリス[N,Nージ(mートリル)アミ丿] ベンゼン(略称:m ーMTDAB)、4,4',4'`ートリス(Nーカルパゾリル)トリフェニルアミン(略称:TCTA)、フタロシアニン(略称:HゥPc)、銅フタロシアニン(略称:Cu Pc)、バナジルフタロシアニン(略称:VOPc)等が挙げられる。

[0044]

図1 (B) において、正孔注入層117は、第1の電極101から複合層116へ正孔の注入を補助する機能を有する層である。正孔注入層117を設けることによって、第1の電極101と複合層116との間のイオン化ポテンシャルの差が緩和され、正孔が注入

[0045]

第3の層113は、第2の電極102から注入される電子を第2の層である発光層に運 ぶ又は注入する機能を持つ層であれは良く、その構成は限定されない。第3の層113が 例えば電子輸送層を有する場合は、電子輸送層は一般的に電子を輸送する機能を有する層 であれば何でもよい。電子輸送層を形成する材料としては、トリス(8-キノリノラト) アルミニウム (略称:Ala3)、トリス(4一メチル―8―キノリノラト) アルミニウ ム (略称:Almq3)、ビス (10-ヒドロキシベンゾ [h] ーキノリナト) ベリリウ ム (略称:BeBg)、ビス (2ーメチルー8ーキノリノラト) ー4ーフェニルフェノ ラトーアルミニウム(略称:BAlq)、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾ オキサゾラト] 亜鉛(略称:Zn(BOX) $_{1}$)、ビス [2-(2-ヒドロキシフェニル) ベンゾチアゾラト] 亜鉛(略称: Z n (B T Z) ₁) 等の金属錯体の他、 2 ー (4 ービ フェニリル) - 5 - (4 - t e r t - プチルフェニル) - 1 , 3 , 4 - オキサジアゾール (略称: PBD)、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4 ーオキサジアゾールー2ーイル] ベンゼン(略称:OXD-7)、3ー(4ーtert-プチルフェニル) -4-フェニル-5-(4-ピフェニリル) -1, 2, 4-トリアゾール (略称: TAZ)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニ n) - 5 - (4 - ビフェニリル) - 1, 2, 4 - トリアゾール (略称:p - E t T A Z) 、パソフェナントロリン(略称:BPhen)、パソキュプロイン(略称:BCP)、4 , 4 ービス(5 ー メチルベンズオキサゾルー 2 ーイル)スチルベン(略称: B z O s)等 が挙げられる。

[0046]

[0047]

第3の層113が電子発生層を有する場合、電子発生層としては、一般的に電子を発生する機能を有する層であれば何でもよい。電子を発生する層であり、電子輸送性の高い物質およびパイポーラ性の物質から選ばれる少なくとも一の物質と、これらの物質に対し電子供与性を示す物質とを混合して形成することができる。ここで、電子輸送性の高い物質およびパイポーラ性の物質の中でも特に 1×10^{-6} c m $^2/V$ s 以上の電子移動度を有する物質であることが好ましい。電子輸送性の高い物質およびパイポーラ性の物質について

は、それぞれ、上記したものを用いることができる。また、電子供与性を示す物質としては、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の中から選ばれた物質、具体的にはリチウム(Li)、カルシウム(Ca)、ナトリウム(Na)、カリウム(K)、マグネシウム(Mg)等を用いることができる。また、アルカリ金属酸化物またはアルカリ土類金属酸化物、アルカリ金属窒化物、アルカリ土類金属窒化物等、具体的にはリチウム酸化物(Li2O)、カルシウム酸化物(CaO)、ナトリウム酸化物(Na2O)、カリウム酸化物(K2O)、マグネシウム酸化物(MgO)、フッ化リチウム(LiF)、フッ化セシウム(CsF)、フッ化カルシウム(CaF2)等から選ばれる少なくとも一の物質も電子供与性を示す物質として用いることができる。

[0048]

第1の電極101はインジウム錫酸化物、酸化珪素を含むインジウム錫酸化物、2~20%の酸化亜鉛を含む酸化インジウムの他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、バラジウム(Pd)、窒化タンタル等の仕事関数の高い物質を用いて形成することができる。

[0049]

また、第2の電極102についても、インジウム錫酸化物、酸化珪素を含むインジウム 錫酸化物、2~20%の酸化亜鉛を含む酸化インジウムの他、金(Au)、白金(Pt) 、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)、窒化タンタル等の仕事関 数の高い物質を用いて形成してもよいし、アルミニウム、またはマグネシウム等の仕事関 数の低い物質を用いて形成してもよい。

[0050]

本形態で示す発光素子は、第1の電極または第2の電極から順に、公知の成膜方法を用いて積層していくことが可能である。特に、複合層は、共役分子と電子受容性物質の両方を抵抗加熱により蒸発させ、共蒸着して形成することができる。その他、共役分子を抵抗加熱により蒸発させる一方で、電子受容性物質をエレクトロンビーム(EB)により蒸発させ、共蒸着しても良い。また、共役分子を抵抗加熱により蒸発させると同時に、電子受容性物質をスパッタリングし、両方を同時に堆積する手法も挙げられる。その他、湿式法により成膜しても良い。

[0051]

また、第1の電極101及び第2の電極102も同様に、抵抗加熱による蒸着法、EB蒸着、スパッタリング、湿式法などを用いることができる。

[0052]

第2の電極102から順に成膜し、第1の電極101をスパッタにより成膜する場合、第1の電極の下に位置する層へのスパッタダメージがあった。しかし複合層は有機膜よりも硬い性質を持つため、図1(A)や図1(C)の構成の場合、スパッタダメージを受けにくく、スパッタダメージから発光層を保護する保護膜となる。これにより欠陥の少ない発光素子を得ることができる。

[0053]

(実施の形態2)

本実施の形態を図2を用いて説明する。

[0054]

図2において、第1の電極201と第2の電極202との間に、第1の電極201と接する第1の層211、第1の層211と接する第2の層212、第2の層212と第2の電極202に接する第3の層213とを有する発光素子が示されている。第1の電極201の電位は、第2の電極202の電位よりも高くなるように電圧が印加される。第2の層212は発光層であり、第1の層211は、正孔を第2の層である発光層に運ぶまたは注入する機能を持つ層である。第1の層は、正孔注入層または正孔輸送層を有すれば良い。本形態の発光材料、第1及び第2の電極材料、電子輸送性材料、正孔輸送性材料、正孔注

入性材料としては実施の形態」で示した材料を用いることができる。

[0055]

第3の層2·13は、第2の電極202側に複合層214、第2の層212側に電子発生層215を有する。電子発生層215と第2の層212との間には、電子輸送層等の層が介在していても良いし、介在していなくとも良い。

[0056]

[0057]

本形態の構成により、発光層である第2の層212と第2の電極202との間に複合層214を設けることができる。複合層214は導電性が高い膜であるため、複合層を膜厚化することでき、これにより短絡を防ぎ光学設計のしやすい発光素子を得ることができる。また、複合層は結晶化し難いため、層の結晶化に起因した動作不良の少ない発光素子を得ることができる。

[0058]

なお、第1の層211内に正孔輸送層や、電子発生層215と第2の層212と間に電子輸送層を設けるか否かについては実施者が適宜選択すればよい。例えば、正孔輸送層、電子輸送層を設けなくても金属に起因した消光等の不具合が生じない場合等は、必ずしもこれらの層を設ける必要がない。

[0059]

本形態で示す発光素子は、実施の形態lで示した作製方法と同様に、公知の成膜方法で 形成することができる。

[0060]

第1の電極201から順に成膜し、第2の電極202をスパッタにより成膜する場合、第2の電極の下に位置する層へのスパッタダメージがあった。しかし複合層214は有機膜よりも硬い性質を持つため、スパッタダメージを受けにくく、スパッタダメージから発光層を保護する保護膜となる。これにより欠陥の少ない発光素子を得ることができる。

[0061]

(実施の形態3)

本実施の形態は、実施の形態1で示した第2の層112と第1の電極101との間の積層構造と、実施の形態2で示した第2の層212と第2の電極202との間の積層構造を組み合わせたものである。

[0062]

この場合、第1の電極と発光層との間、第2の電極と発光層との間それぞれに複合層を配置することになり、より導電性が高く、且つ正孔注入性または正孔輸送性が高い発光素子を提供することができる。つまり、第1の実施の形態の利点と第2の実施の形態の利点を合わせ持った発光素子が得られる。

[0063]

本形態の一形態である発光素子を図るに示す。図る(A)~図る(C)は、一対の電極

である第1の電極301と第2の電極302の間に発光層である第2の層312が配置され、第1の電極301と第2の層312の間に第1の層311が配置され、第2の電極302と第2の層312の間に第3の層313が配置されている。第3の層は、第2の電極302側にある第1の複合層324と第2の層312側にある電子発生層325を有する。図3に示す素子は、第1の電極301の電位が第2の電極302の電位よりも高くなるように電極に電圧を印加すると発光する発光素子である。

[0064]

図3(A)は図1(A)と図2を組み合わせた構造である。図3(A)の第1の層31 1は、第2の層312側に正孔輸送層326を有し、第1の電極301側に第2の複合層327を有する。

[0065]

図3(B)は図1(B)と図2を組み合わせた構造である。図3(B)の第1の層31 1は、第2の層側に第2の複合層328と有し、第1の電極301側に正孔注入層329 を有する。

[0066]

図3 (C) は図1 (C) と図2を組み合わせた構造である。図3 (C) の第1の層311は第2の複合層330となっている。

[0067]

本形態において、第1の複合層と第2の複合層を構成する共役分子と電子受容性物質との複合体は、同一でもよいし、異なっていても良い。本形態の発光素子は、第1の層311及び第3の層313の両方に複合層を設けることができるため、導電性が高く、光学設計に優れた素子となる。また、図3(A)や図3(C)の構成では、第1の電極または第2の電極の形成にともなうスパッタダメージを防ぐことができる。

[0068]

図3では、電子発生層325と第2の層312との間に電子輸送層を設けていないが、 設けるか否かについては実施者が適宜選択すればよい。

[0069]

(実施の形態4)

本発明の発光素子は、表示装置の画素にも使用できるし、光源としても使用できる。発 光素子を画素に用いた場合は、動作不良がなく、表示色が良好な画像を表示できる。また 、高信頼性な表示装置または発光装置を提供できる。また、発光素子を光源に用いた場合 は、発光素子の動作不良に起因した不具合が少なく、明るい発光装置を得ることができる

[0070]

本形態では、本発明の発光素子を画素に有する表示機能を有する発光装置について説明する。

[0071]

図4は発光装置を上面からみた模式図である。図4において、基板 6500上には、本発明の発光素子を用いた画素部 6511と、ソース信号線駆動回路 6512と、書込用ゲート信号線駆動回路 6514とが設けられている。ソース信号線駆動回路 6512と、書込用ゲート信号線駆動回路 6513と、消去用ゲート信号線駆動回路 6513と、消去用ゲート信号線駆動回路 6514とは、それぞれ、配線群を介して、外部入力端子であるFPC (フレキシブルブリントサーキット) 6503と接続している。そして、ソース信号線駆動回路 6512と、書込用ゲート信号線駆動回路 6513と、消去用ゲート信号線駆動回路 6513と、消去用ゲート信号線駆動回路 6514とは、それぞれ、FPC 6503からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。またFPC 6503にはブリント配線基盤(PWB)6504か取り付けられている。なお、駆動回路部は、上記のように必ずしも画素部 6511と同一基板上に設けられている必要はなく、例えば、配線バターンが形成されたFPC上に ICチップを実装したもの(TCP)等を利用し、基板外部に設けられていてもよい。

[0072]

画素部6511には、列方向に延びた複数のソース信号線が行方向に並んで配列している。また、電流供給線が行方向に並んで配列している。また、画素部6511には、行方向に延びた複数のゲート信号線が列方向に並んで配列している。また画素部6511には、実施例の形態1~3で示したような発光素子を含む一組の回路が複数配列している。

[0073]

図5は、一画素を動作するための回路を表した図である。図5に示す回路には、第1のトランジスタ901と第2のトランジスタ902と本発明の発光素子904とが含まれている。

[0074]

第1のトランジスタ901と、第2のトランジスタ902とは、それぞれ、ゲート電極と、ドレイン領域と、ソース領域とを含む三端子の素子であり、ドレイン領域とソース領域の間にチャネル領域を有する。ここで、ソース領域とドレイン領域とは、トランジスタの構造や動作条件等によって変わるため、いずれがソース領域またはドレイン領域であるかを限定することが困難である。そこで、本形態においては、ソースまたはドレインとして機能する領域を、それぞれ第1電極、第2電極と表記する。

[0075]

ゲート信号線911と、書込用ゲート信号線駆動回路913とはスイッチ918によって電気的に接続または非接続の状態になるように設けられている。また、ゲート信号線取動回路914とはスイッチ919によって電気的に接続するように設けられている。また、ソース信号線912は、スイッチ920によってソース信号線駆動回路915または電源916のいずれかに電気のに接続するように設けられている。また、第1のトランジスタの第1電極はソース信号線912に電気的に接続している。また、第1のトランジスタの第1電極はソース信号線912に電気的に接続している。また、第1のトランジスタの第1電極と電気的に接続している。第2のトランジスタ902のゲート電極と電気的に接続している。第2のトランジスタ902のゲート電極と電気的に接続している。第2のトランジスタ902のゲート電気的に接続している。また、第2電極は発光素子904に含まれる一の電極と電気的に接続している。またスイッチ918は、書込用ゲート信号線駆動回路913に含まれていてもよい。また、スイッチ920についてもソース信号線駆動回路915の中に含まれていてもよい。

[0076]

また画素部におけるトランジスタや発光素子等の配置について特に限定はないが、例えは図6の上面図に表すように配置することができる。図6において、第1のトランジスタ1001の第1電極はソース信号線1004に接続し、第2の電極は第2のトランジスタ1002のゲート電極に接続している。また第2トランジスタの第1電極は電流供給線1005に接続し、第2電極は発光素子の電極1006に接続している。ゲート信号線103の一部は第1のトランジスタ1001のゲート電極として機能する。

[0077]

(実施の形態5)

本発明の発光素子を含む発光装置の一態様について、図7及び図8を用いて説明する。

[0078]

図7において、トランジスタ11は、本発明の発光素子12を駆動するために設けられている。発光素子12は、第1の電極13と第2の電極14との間に少なくとも複合層と発光物質を含む層とが積層された層15を有する本発明の発光素子である。トランジスタ11のドレインと第1の電極13とは、第1層間絶縁膜16(16a、16b、16c)を貫通している配線17によって電気的に接続されている。また、発光素子12は、隔壁層18によって、隣接して設けられている別の発光素子と分離されている。このような構成を有する本発明の発光装置は、本形態において、基板10上に設けられている。

[0079]

なお、図7に示されたトランジスタ11は、半導体層を中心として基板と逆側にゲート

電極が設けられたトップゲート型のものである。但し、トランジスタ11の構造については、特に限定はなく、例えばボトムゲート型のものでもよい。またボトムゲートの場合には、チャネルを形成する半導体層の上に保護膜が形成されたもの(チャネル保護型)でもよいし、或いはチャネルを形成する半導体層の一部が凹状になったもの(チャネルエッチ型)でもよい。なお、21はゲート電極、22はゲート絶縁膜、23は半導体層である。

[0080]

また、トランジスター」を構成する半導体層は、結晶性、非結晶性のいずれのものでも よい。また、セミアモルファス等でもよい。

[0081]

なお、セミアモルファスな半導体とは、次のようなものである。非晶質と結晶構造(単 結晶、多結晶を含む)の中間的な構造を有し、自由エネルギー的に安定な第3の状態を有 する半導体であって、短距離秩序を持ち格子歪みを有する結晶質な領域を含んでいるもの である。また少なくとも膜中の一部の領域には、0.5~20nmの結晶粒を含んでいる 。ラマンスペクトルが520cm-1よりも低波数側にシフトしている。X線回折ではSi 結晶格子に由来するとされる(1111)、(220)の回折ピークが観測される。未結合 手(ダングリングボンド)を終端するために水素またはハロゲンを少なくとも1原子%ま たはそれ以上含ませている。所謂微結晶半導体(マイクロクリスタル半導体)とも言われ ている。珪化物気体をグロー放電分解(プラズマCVD)して形成する。珪化物気体とし ては、SiH4、その他にもSi2H6、SiH2Cl2、SiHCl3、SiCl4、SiF4 などを用いることができる。この珪化物気体を H_1 、又は、 H_2 とHe、Ar、Kr、Neから選ばれた一種または複数種の希ガス元素で希釈しても良い。希釈率は2~1000倍 の範囲。圧力は概略 O. 1 P a ~ 1 3 3 P a の範囲、電源周波数は 1 M H z ~ 1 2 0 M H z、好ましくは13MHz~60MHz。基板加熱温度は300℃以下でよく、好ましく は100~250℃。膜中の不純物元素として、酸素、窒素、炭素などの大気成分の不純 物は1×10²⁰/cm³以下とすることが望ましく、特に、酸素濃度は5×10¹⁹/cm³ 以下、好ましくは 1×10^{19} / cm^3 以下とする。なお、セミアモルファスなものを有す る半導体を用いたTFT(薄膜トランジスタ)の移動度はおよそ1~10m²/Vsec となる。

[0082]

また、半導体層が結晶性のものの具体例としては、単結晶または多結晶性の珪素、或いはシリコンゲルマニウム等から成るものが挙げられる。これらはレーザー結晶化によって 形成されたものでもよいし、例えはニッケル等を用いた固相成長法による結晶化によって 形成されたものでもよい。

[0083]

なお、半導体層が非晶質の物質、例えばアモルファスシリコンで形成される場合には、トランジスタ11およびその他のトランジスタ(発光素子を駆動するための回路を構成するトランジスタ)は全てNチャネル型トランジスタで構成された回路を有する発光装置であることが好ましい。それ以外については、Nチャネル型またはPチャネル型のいずれかーのトランジスタで構成された回路を有する発光装置でもよいし、両方のトランジスタで構成された回路を有する発光装置でもよい。

[0084]

さらに、第1層間絶縁膜16は、図7(A)~(C)に示すように多層でもよいし、または単層でもよい。なお、16aは酸化珪素や窒化珪素のような無機物から成り、16bはアクリルやシロキサン(シリコン(Si)と酸素(O)との結合で骨格構造が構成され、置換基に少なくとも水素を含む物質)、塗布成膜可能な酸化珪素等の自己平坦性を有する物質から成る。さらに、16cはアルゴン(Ar)を含む窒化珪素膜から成る。なお、各層を構成する物質については、特に限定はなく、ここに述べたもの以外のものを用いてもよい。また、これら以外の物質から成る層をさらに組み合わせてもよい。このように、第1層間絶縁膜16は、無機物または有機物の両方を用いて形成されたものでもよい。または無機膜と有機膜のいずれか一で形成されたものでもよい。

[0085]

隔壁層18は、エッジ部において、曲率半径が連続的に変化する形状であることが好ましい。また隔壁層18は、アクリルやシロキサン、レジスト、酸化珪素等を用いて形成される。なお隔壁層18は、無機膜と有機膜のいずれか一で形成されたものでもよいし、または両方を用いて形成されたものでもよい。

[0086]

なお、2 (C)では、第1層間絶縁膜16のみがトランジスタ11と発光素子12の間に設けられた構成であるが、2 (B)のように、第1層間絶縁膜16(16 a、16b)の他、第2層間絶縁膜19(19a、19b)が設けられた構成のものであってもよい。2 (B)に示す発光装置においては、第1の電極13は第2層間絶縁膜19を貫通し、配線17と接続している。

[0087]

第2層間絶縁膜19は、第1層間絶縁膜16と同様に、多層でもよいし、または単層でもよい。19aはアクリルやシロキサン(シリコン(Si)と酸素(〇)との結合で骨格構造が構成され、置換基に少なくとも水素を含む物質)、塗布成膜可能な酸化珪素等の自己平坦性を有する物質から成る。さらに、19bはアルゴン(Ar)を含む窒化珪素膜から成る。なお、各層を構成する物質については、特に限定はなく、ここに述べたもの以外のものを用いてもよい。また、これら以外の物質から成る層をさらに組み合わせてもよい。このように、第2層間絶縁膜19は、無機物または有機物の両方を用いて形成されたものでもよいし、または無機膜と有機膜のいずれか一で形成されたものでもよい。

[0088]

発光素子12において、第1の電極および第2の電極がいずれも透光性を有する物質で構成されている場合、図7(A)の白抜きの矢印で表されるように、第1の電極13側と第2の電極14側の両方から発光を取り出すことができる。また、第2の電極14のみが透光性を有する物質で構成されている場合、図7(B)の白抜きの矢印で表されるように、第2の電極14側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第1の電極13は反射率の高い材料で構成されているか、または反射率の高い材料から成る膜(反射膜)が第1の電極13の下方に設けられていることが好ましい。また、第1の電極13のみが透光性を有する物質で構成されている場合、図7(C)の白抜きの矢印で表されるように、第1の電極13側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第2の電極14は反射率の高い材料で構成されているか、または反射膜が第2の電極14の上方に設けられていることが好ましい。

[0089]

また、発光素子12は、第1の電極13の電位よりも第2の電極14の電位が高くなるように電圧を印加したときに動作するように層15が積層されたものであってもよいし、或いは、第1の電極13の電位よりも第2の電極14の電位が低くなるように電圧を印加したときに動作するように層15が積層されたものであってもよい。前者の場合、トランジスタ11はNチャネル型トランジスタであり、後者の場合、トランジスタ11はPチャネル型トランジスタである。

[0090]

以上のように、本実施の形態では、トランジスタによって発光素子の駆動を制御するアクティブ型の発光装置について説明したが、この他、トランジスタ等の駆動用の素子を特に設けずに発光素子を駆動させるバッシブ型の発光装置であってもよい。

[0091]

図8には本発明を適用して作製したバッシブ型の発光装置の斜視図を示す。図8において、基板951上には、互いに交差する電極952と電極956との間には少なくとも発光物質を含む層と複合層を有する層955が設けられている。電極952の端部は絶縁層903で覆われている。そして、絶縁層903上には隔壁層954が設けられている。隔壁層954の短辺方向の断面は、逆台形状であり底辺の方が上辺よりも短い。このように、隔壁層954を設けることで、静電気等に起因した発光素子の不良を防ぐことが出来る

。また、パッシブ型の発光装置においても、低駆動電圧で動作する本発明の発光素子を含むことによって、低消費電力で駆動させることができる。

[0092]

(実施の形態6)

本発明の発光素子を画素として用いた発光装置は、発光素子の動作不良に起因した表示欠陥が少ないため、表示動作が良好である。また、表示欠陥に起因した表示画像の誤認等の少ない電子機器を得ることができる。また、本発明の発光素子を光源として用いた発光装置は、発光素子の動作不良に起因した不具合が少なく良好に照明することができる。このような発光装置をバックライト等の照明部として用いることによって、発光素子の不具合に起因して局所的に暗部が形成されるような動作不良が低減される。

[0093]

本発明を適用した発光装置を実装した電子機器の一実施例を図りに示す。

[0094]

図9(A)は、本発明を適用して作製したパーソナルコンピュータであり、本体5521、筐体5522、表示部5523、キーボード5524などによって構成されている。図7に示したような発光装置を表示部として組み込むことでパーソナルコンピュータを完成できる。また、本発明の発光素子を光源として用いた発光装置を、パックライトとして組み込んでもパーソナルコンピュータを完成させることができる。具体的には、図10に示すように、筐体5511と筐体5514とに液晶装置5512と発光装置5513は本発明の発光素子で構成されるアレイ5518と導光板5517を有する。なお、図10において、液晶装置5512には外部入力端子5516が装着されている。

[0095]

図9(B)は、本発明を適用して作製した電話機であり、本体5552には表示部5551と、音声出力部5554、音声入力部5555、操作スイッチ5556、操作スイッチ5557、アンテナ5553等によって構成されている。本発明の発光素子を有する発光装置を表示部として組み込むことで電話機を完成できる。

[0096]

図9(C)は、本発明を適用して作製したテレビ受像機であり、表示部5531、筐体5532、スピーカー5533などによって構成されている。本発明の発光素子を有する発光装置を表示部として組み込むことでテレビ受像機を完成できる。

[0097]

以上のように本発明の発光装置は、各種電子機器の表示部として用いるのに非常に適している。なお、電子機器は、本形態で述べたものに限定されるものではなく、ナビゲーション装置等、その他の電子機器であってもよい。

[0098]

(実施の形態7)

本形態では、本発明の発光素子の材料として使われる複合体について述べる。複合体は、下記の一般式 [化1] ~ [化5] で示す共役分子のいずれかと、その共役分子に対して電子受容性を持つ物質とを混合し、複合体としたものである。

[0099]

(式中、XとZは同一または異なっており、且つ、XとZはそれぞれ硫黄原子、酸素原子、水素基、アルキル基もしくはアリーレン基を持つ窒素原子、Xは水素基、アルキル基もしくはアリーレン基を持つ珪素原子であり、Xはアリーレン基であり、X0 がらX1 がらX2 がられぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、X3 はアルコキシ基である。)

【0100】

$$R^1$$
 R^2 R^3 R^4 R^5 R^5 R^6

(式中、Yはアリーレン基であり、R¹からR⁶はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

【0101】 【化03】

$$R^1$$
 R^2 R^3 R^4 R^5 Q Q Q Q Q Q Q

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^1 から R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基である。)

[0102]

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^1 から R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基であり、 R^7 と R^8 は水素基、アルキル基又はアリール基である。)

[0103] 【化05】

$$R^1$$
 R^2 R^3 R^4
 R^5 Si R^6
 R^7 R^8 R^9 R^{10}

(式中、Yはアリーレン基であり、 R^1 から R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、アリール基、アルキル基、シアノ基、ジアルキルアミノ基、チオアルコキシ基、又はアルコキシ基であり、 R^1 から R^{10} はそれぞれ独立に、水素基、アルキル基又はアリール基である。)

[0104]

上記一般式 [化1] ~ [化5] で示される共役分子において、式中Yは、アリーレン基であり、且つ、炭素数 6 から 2 0 の炭化水素芳香環からなる二価の基又は酸素、窒素、硫黄もしくは珪素を含む炭素数 4 から 3 0 の二価の複素環式基である。

[0105]

これらの共役分子は非常にイオン化ポテンシャルが小さいため、電子受容性物質と複合体を形成することで、複合体内部で電子の授受が行われる。従って、複合体でできた複合層は、正孔が発生するもしくは正孔が移動しやすいという特徴を持つ。また、そのような特徴に起因して、複合層は導電性が高いという特徴をも持つ。従って、イオン化ポテンシャルの小さい材料で構成された層と複合層を比較すると、複合層は電子受容性物質を有しているためより正孔の流れが良好な層となる。

[0106]

電子受容性物質としては、金属酸化物または金属窒化物が好ましい。中でも周期表第4族乃至第12族のいずれかの遷移金属酸化物は、電子の受容性が高い。また、周期表第4族乃至第8族のいずれかの遷移金属酸化物は電子受容性がさらに高いものが多い。特に酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化レニウム、酸化タングステン、酸化ルテニウム、酸化チタン、酸化クロム、酸化ジルコニウム、酸化ハフニウム、酸化タンタル、酸化ニオブが好適である。

[0107]

また、複合層における電子受容性物質と一般式 [化1] ~ [化5] で示される共役分子

(1) ~ (5) いずれかとの最適な混合比は、モル比で電子受容性物質/共役分子=0. 1~10、好ましくは0.5~2である。この混合比のときが、電子受容性物質と共役分子との間で電子の授受が効率よく行われ、最も複合層の導電性が高くなる。

【実施例1】

[0108]

本実施例では、一般式 [化2] で示される化合物の代表として、下式 [化6] である 1 , 4-9 (3, 4-x+1) ボーン・カー 1 で示される 1 , 1 で示される 1 、1 で 1 の 1 で 1 の 1 で 1 の

【化06】

【化07】

[0109]

化合物 [化 6] ならびに [化 7] は非常にイオン化ポテンシャルが小さい。すなわちー般式 [化 1] から [化 5] で表される化合物においては、 R^{\parallel} と R^{2} で環構造を形成し、 R^{3} と R^{4} で環構造を形成することで分子全体の有効共役長が拡張することがわかった。

[0110]

【化08】

RO OR RO OR
$$(R = n-C_6H_{13})$$

$[0\ 1\ 1\ 1\]$

さらに、 [化6] と [化8] とでサイクリックボルタンメトリーの測定を行った。この測定結果からも、 [化6] が、より拡張された共役系を有していることが示された。サイクリックボルタンメトリーの測定は、アセトニトリルを溶媒として用い、過塩素酸テトラブチルアンモニウムを支持電解質として用いて行った。作用電極、ならびに対極は白金である。また、参照電極は銀/塩化銀を用いた。

[0112]

結果、 [化6] の酸化電位は $1.20V(vs.Ag/Ag^+)$ であるのに対し、 [化8] の酸化電位は1.68Vであり、 [化8] がより酸化しにくいことが分かった。

[0113]

つまり、一般式 [化1] から [化5] で表される共役分子において、 R^{-1} と R^{-2} で環構造を形成し、且の R^{-3} と R^{-4} で環構造を形成すると、分子全体の有効共役長が拡張する。有効共役長が拡張すると、バンドギャップが小さくなり、イオン化ポテンシャルが小さくなる。従って、より共役分子の電子供与性が上がることになる。そのため、有効共役長が拡張した共役分子と電子受容性物質を用いて複合層を形成することで、さらに正孔が発生しやすく、導電率の高い複合層が得られる。

【実施例2】

[0114]

本実施例では、一般式 [化2] で示される化合物の代表として、下式 [化9] で示される 1,4-ジ(3,4-エチレンジオキシー5ートリメチルシリルー2ーチエニル) ベンゼンの合成について述べる。

【化09】

$$(H_3C)_3Si$$
 S $Si(CH_3)_3$

[0115]

合成スキームを図12に示す。 3 、 4 ーエチレンジオキシチオフェン(図12(A)の化合物、10.30g、72.5mmol)の乾燥THF溶液(100mL)に1.56Nのnープチルリチウムのヘキサン溶液(48mL、74.9mmol)を一78℃にて滴下した。滴下終了後、一78℃にて1時間攪拌した。この溶液にクロロトリメチルシラン(8.93g、82.3mmol)を滴下し、この後反応溶液を室温まで徐々に昇温した。3時間攪拌した後、反応混合物を減圧下において濃縮し、この後ヘキサンで抽出した。ヘキサン層は硫酸マグネシウムで乾燥した後、ろ過した。ろ液を濃縮し、残渣を減圧蒸留(200Pa、94-100℃)することにより、図12(B)で示される化合物、2-トリメチルシリル-3,4-エチレンジオキシチオフェンを得た。収率84%。 1 HNMR(300MHz、CDC1 $_3$) δ 0.286(s、9H)、4.16(s、2H)、4.17(s、2H)、6.54(s、1H): 13 С NMR(75MHz、CDC1 $_3$) δ $_{}$ 0.74、 64.42、 64.51、 104.68、 111.28、 142.63、 147.25。

[0116]

図12(B)で示される化合物、2ートリメチルシリルー3,4一エチレンジオキシチオフェン(18.6g、86.0 mmo1)の乾燥THF溶液(150mL)に、-78 でにおいて1.56Nのn-ブチルリチウムのヘキサン溶液(55mL、86.0 mmo1)を滴下した。滴下終了後、-78でにて1時間、0でにおいて30分攪拌した。この溶液を塩化亜鉛(11.69g、85.8 mmo1)の乾燥THF懸濁液(100mL)に室温にて滴下した。その後1時間攪拌して図12(C)で表される化合物を系中で得た。この後、1、4-ジブロモベンゼン(6.759g、28.7 mmo1)とテトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム(0)(1.28g、1.11 mmo1)を加え、さらに10時間加熱還流した。反応混合物を水約1Lへ投入し、沈殿物をろ過した。ろ過やを乾燥させた後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開液、ヘキサン/酢酸エチル 10/1から2/1)によって精製し、更にヘキサン/酢酸エチル(5/1)によって再結晶することにより、図12(D)で表される化合物、1、4-ジ(3、4-エチレ

ンジオキシー5ートリメチルシリルー2ーチエニル) ベンゼンを得た。収率43%。 1 H NMR (300MHz、CDC $_{13}$) δ 0.311(s、 $_{1}$ 8H)、 $_{4}$.27(s、 $_{4}$ 4H)、 $_{4}$.29(s、 $_{4}$ 4H)、 $_{7}$.69(s、 $_{4}$ 4H)。

[0117]

合成した図12(D)で表される化合物の紫外一可視吸収スペクトルを図13に示す。 図13に示すように、可視光領域における吸収は極めて小さく、これに起因して素子の着 色を大幅に低減できることが可能である。

【実施例3】

[0118]

[0119]

さらに R^5 と R^6 に水素を導入すると溶解性が低いが、水素以外の置換基を導入すると、高い溶解性を反映して膜質の良い蒸着膜が得られら。

【実施例4】

[0120]

本実施例では、一般式 [化2] で示される化合物の代表として、下式 [化10] で示される4,4'ービス(5ーフェニルー3,4ーエチレンジオキシー2ーチエニル) ビフェニル (以下、DPEBPと呼ぶ)の合成について述べる。

【化10】

[0121]

まず、中間体である下式 [化11] (以下、中間体 a と呼ぶ)の合成について述べる。 2、3ージヒドロチエノー [3、4ーb] ー1、4ージオキシン 2 2・4 1 g に 乾燥 T H F 2 5 0 m 1 を加え、-78 $\mathbb C$ に冷却した。n- ブチルリチウム(1・5 8 M - キサン溶液)100 m 1 を滴下し、1 時間撹拌した。得られた混合物を室温にて塩化亜鉛 2 5・8 4 g に加え、室温にてさらに 1 時間撹拌した。これに、ブロモベンゼン 1 8・3 m 1 とテトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 1・8 3 g を添加し、加熱還流下 5 時間撹拌した。室温に冷却した溶液に酢酸エチル、1 M塩酸、水を加え、有機層を分取した。硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。カラムクロマトグラフィー(- キサン/酢酸エチル)で精製した。NMR データを以下に示す。- H NMR(CDC 1 3、- O)7・7 2 p p m(d、2 H)、7・3 6 p p m(t、2 H)、7・2 1 p p m(t、1 H)、6・2 9 p p m(s、1 H)、4・2 9 p p m(m、4 H)。

[0122]

次に、上記で得られた中間体 a 1 0 . 3 6 gに THF 1 0 0 m 1 を加え、-78 $^{\circ}$ に 冷却した。n-7 $^{\circ}$ $^{$

【実施例5】

[0123]

本実施例では、一般式 [化2] で示される化合物の代表として、下式 [化12] で示される1,4-ピス(5-フェニルー3,4-エチレンジオキシー2-チエニル) ベンゼン(以下、DPEBZと呼ぶ)の合成について述べる。

【化12】

[0124]

【実施例6】

[0125]

本実施例では、一般式 [化2] で示される化合物の代表として、下式 [化13] で示される4、4'ーピス [5-(4-tert-ブチルフェニル)-3,4-エチレンジオキシー2-チエニル) ピフェニル (以下、DtBuPEBPと呼ぶ)の合成について述べる

[0126]

【化14】

[0127]

次に、上記で得られた中間体 b 2 . 5 6 gに THF 5 0 m l を加之、-78 $^\circ$ に冷却した。 L D A (2 . 0 M) 5 . 1 2 m l を滴下し、1 時間撹拌した。塩化亜鉛 l . 5 3 g を添加し、室温にてさらに1 時間撹拌した。これに、4 , 4 ' ージョードビフェニル l . 7 l g と テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム l 0 7 m g を添加し、加熱環流下 6 時間撹拌した。室温に冷却した溶液に酢酸エチル、1 M 塩酸、水を加之、有機層を分取した。硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。クロロホルムにて再結晶を行い、本発明の有機化合物 D t B u P E B P を得た。N M R データを以下に示す。 1 H N M R (C D C l $_3$ 、 δ) 7 . 8 0 p p m (d、4 H)、7 . 6 6 p p m (m、8 H)、7 . 4 l p p m (d、4 H)、4 . 3 6 p p m (s、8 H)、1 . 3 2 p p m (s、9 H)。【図面の簡単な説明】

[0128]

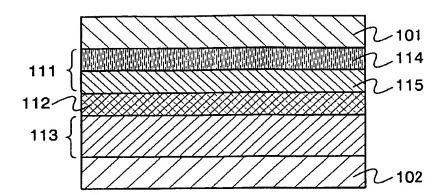
- 【図1】本発明の発光素子を示す図。
- 【図2】本発明の発光素子を示す図。
- 【図3】本発明の発光素子を示す図。
- 【図4】 発光装置の上面図を示す図。
- 【図5】 一画素を動作するための回路を表した図。
- 【図6】画素部における上面図。
- 【図7】本発明の発光素子を示す図。

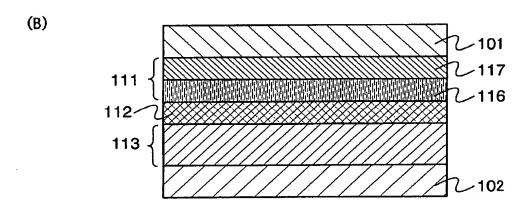
- 【図8】本発明のバッシブ型の発光装置を示す図。
- 【図9】本発明の電子機器を示す図。
- 【図10】本発明の発光素子をバックライトに組み込んだ電子機器を示す図。
- 【図11】共役分子の紫外一可視スペクトルを示す図。
- 【図12】合成スキーム図。
- 【図13】共役分子の紫外一可視スペクトル(塩化メチレン中、2.55×10⁻⁵M)を示す図。
- 【図14】従来例を示す図。

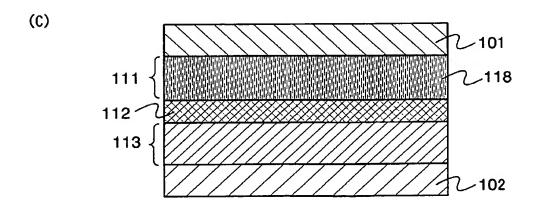
【符号の説明】

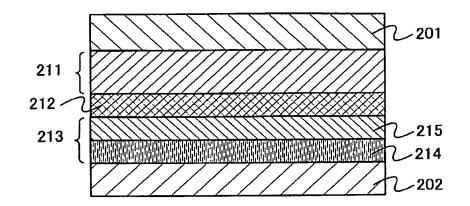
- [0129]
- 101 第1の電極
- 102 第2の電極
- 111 第1の層
- 112 第2の層
- 113 第3の層
- 114 複合層
- 115 正孔輸送層
- 116 複合層
- 117 正孔注入層
- 118 複合層

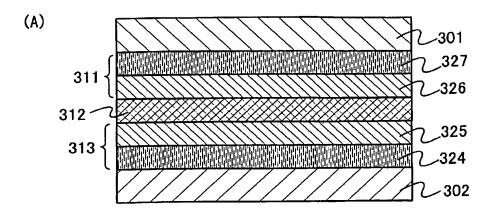


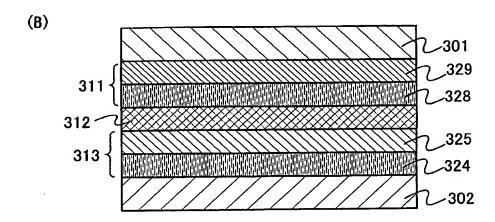


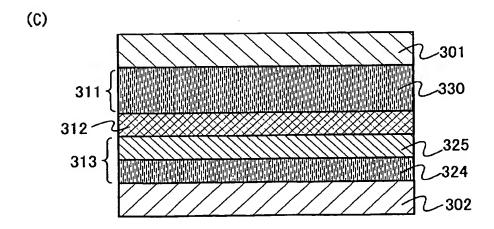


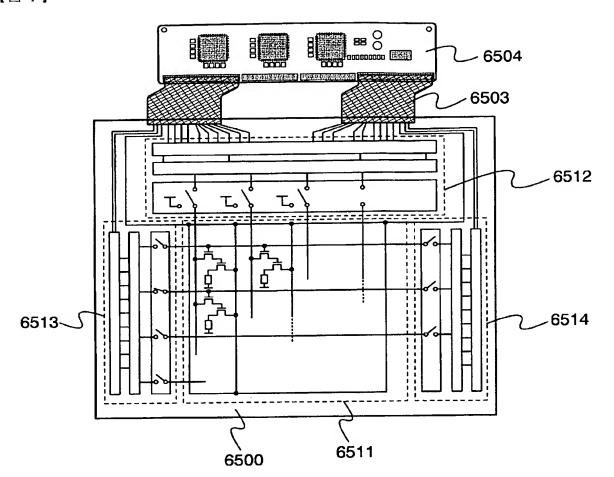


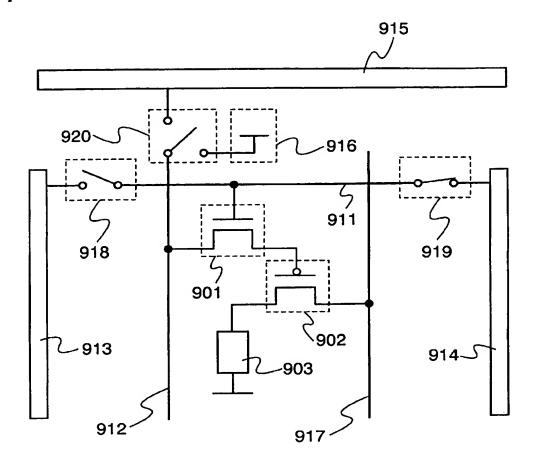


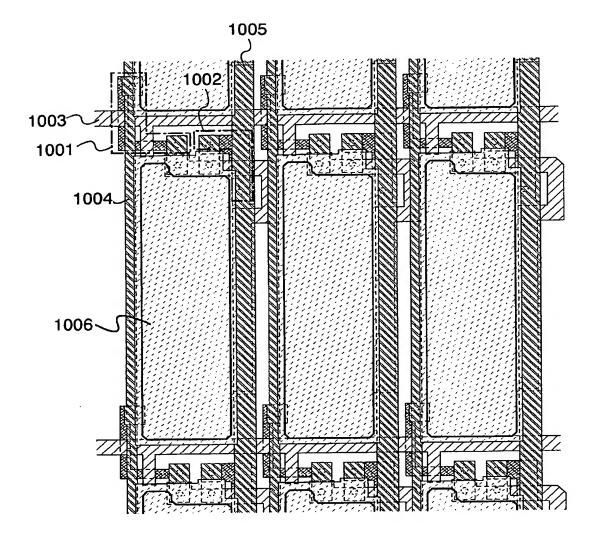


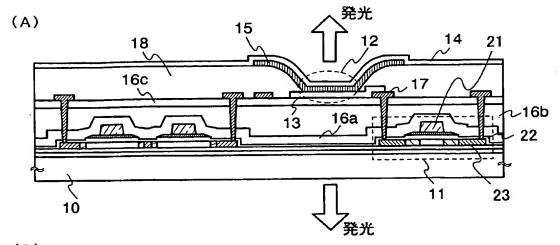


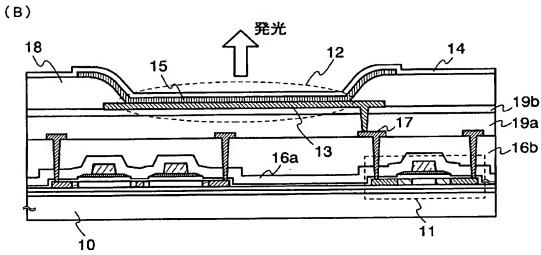


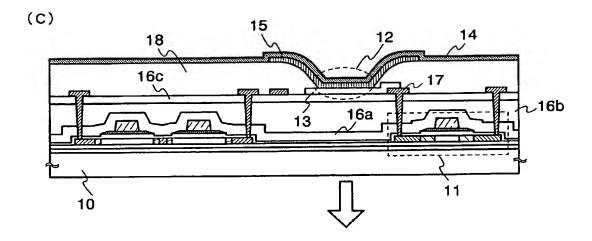


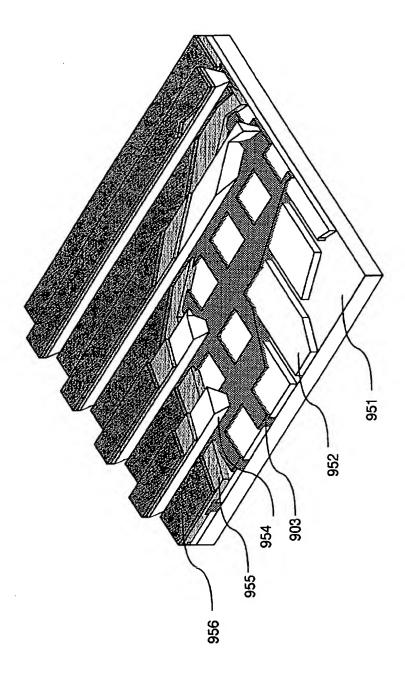


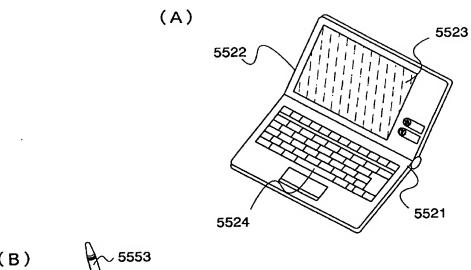


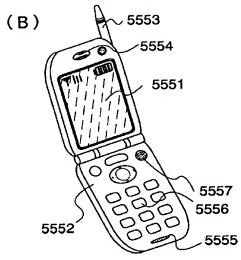


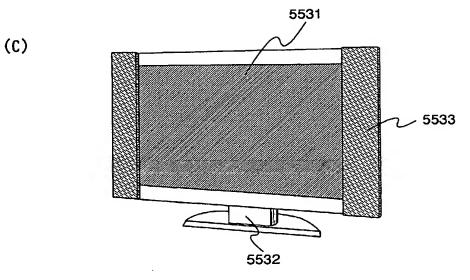


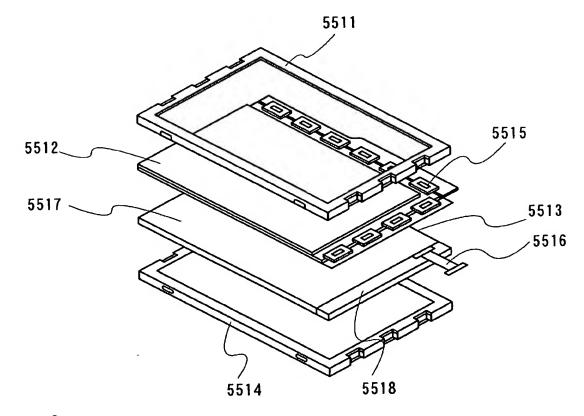




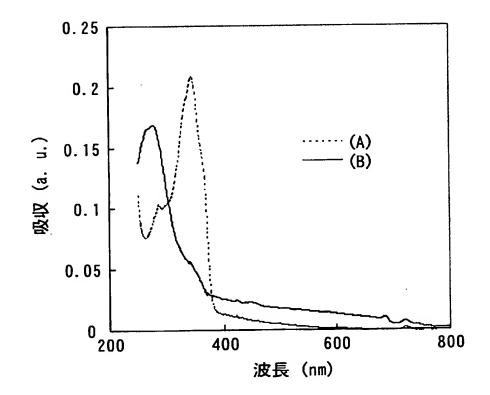




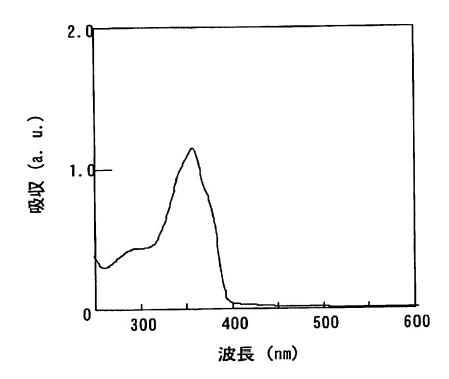


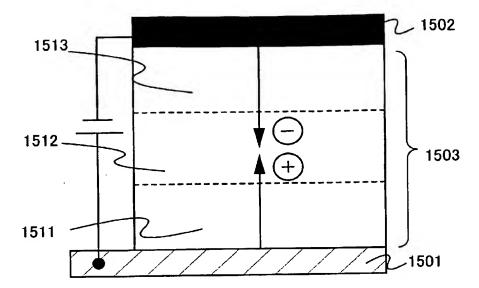


【図11】



【図13】





【書類名】要約書

【要約】

【課題】

電界発光素子の光学設計を最適化したり、電極同士の短絡を防ぐためには、電界発光素子を構成する層を厚くする必要があった。しかし、従来の素子材料では厚くした分だけ、 駆動電圧や消費電力が上昇してしまい、所望の光学設計ができなかった。

【解決手段】

イオン化ポテンシャルが小さい共役分子と、その共役分子に対して電子受容性のある物質を混合し、複合体を形成する。複合体を素子材料として用い素子を構成する複合層を形成する。複合層は第1の電極と発光層との間、もしくは第2の電極と発光層との間に配置される。複合層は導電性が高いため厚膜化しても駆動電圧が上昇しない。これにより電極の短絡を防止できる電界発光素子を提供することができる。

【選択図】 図1

00015387819900817

神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所